

03;05;09;12

Импульсный нагрев тонких слоев из смеси порошков микроволнами высокой интенсивности

© Г.М. Батанов, Н.К. Бережецкая, И.А. Косый, А.Н. Магунов, В.П. Силаков

Институт общей физики РАН,
117942 Москва, Россия
e-mail: kossyi@fpl.gpi.ru

(Поступило в Редакцию 13 ноября 2000 г.)

Исследован импульсный нагрев микроволнами с интенсивностью около $10 \text{ kW} \cdot \text{cm}^{-2}$ тонких слоев (0.05 cm) механических смесей проводящих и диэлектрических порошков. Установлено, что характер длины поглощения в таких смесях микроволн mW мощности порядка 1 cm . При интенсивностях $10 \text{ kW} \cdot \text{cm}^{-2}$ и выше и длительностях импульса $5\text{--}8 \text{ ms}$ в серии до 5 импульсов наблюдается расплавление порошкового слоя, а характерный масштаб поглощения падает до значения $\sim 0.05 \text{ c}$. Зарегистрировано падение коэффициента поглощения образцов в течение микроволнового импульса. Рассматривается возможность эффективного поглощения излучения в результате поверхностных пробоев и образования плазмы в порах между крупинками порошка в его объеме.

1. В последние годы придается большое значение технологиям микроволнового нагрева различных материалов (см., например, [1]). В случае керамических порошков окислов различных металлов эффективность такого нагрева не высока из-за низких диэлектрических потерь и для повышения эффективности необходим переход в миллиметровый диапазон длин волн [2]. Особенно затруднительно осуществить эффективный нагрев тонких порошковых слоев.

Между тем значительными коэффициентами поглощения в широкой области обладают материалы, полученные спеканием порошков металлов и их окислов при высоких температурах [3]. К сожалению, для таких материалов не определена характерная длина поглощения и характер проводимости таких материалов, хотя известно, что они обладают проводимостью и на постоянном токе.

Вместе с тем при высоких интенсивностях излучения ($\sim 10^4 \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$ и выше) возможно возникновение поверхностных разрядов, если используется композиция из диэлектрика с проводящими поверхностными включениями [4]. В этом случае наблюдается локализация энерговыделения вблизи поверхности, связанная с пробоями на границе металл–диэлектрик и формированием узкого плазменного слоя в прилегающем к поверхности газа.

В силу сказанного можно сформулировать два вопроса. Во-первых, каково может быть поглощение в механической гетерогенной связи порошков металлов с их окислами? Во-вторых, возможны ли при высоких интенсивностях излучения в таких смесях нелинейные процессы поглощения, аналогичные процессам поверхностного пробоя на гетерогенных поверхностях?

2. В качестве объектов исследования были использованы порошки кремния, титана, алюминия, окисла олова, окисла меди, окисла алюминия и их смесей. Размеры частиц порошков в среднем составляли $10\text{--}40 \mu\text{m}$. Навески порошков помещались между двумя стеклянными пластинками толщиной 2 mm и пластины притирались

друг к другу до получения тонкого порошкового слоя толщиной $0.2\text{--}0.5 \text{ mm}$. Образцы закреплялись в специальном держателе и помещались в каустику пучка гиротрона по нормали к оси микроволнового пучка (рис. 1). Длина волны электромагнитного излучения гиротрона составляла 4 mm , мощность $120\text{--}180 \text{ kW}$ (интенсивность на оси пучка $10\text{--}15 \text{ kW/cm}^2$), использовался гауссов пучок. С помощью квазиоптического ответвителя контролировался сигнал мощности гиротрона и сигнал, отраженный от образца. Длительности микроволнового импульса варьировались от 1 до 8 ms . При использовании последовательности импульсов интервалы между импульсами составляли 2 min .

Помещение порошкового слоя между двумя радиопрозрачными пластинами устраняет открытую воздействию

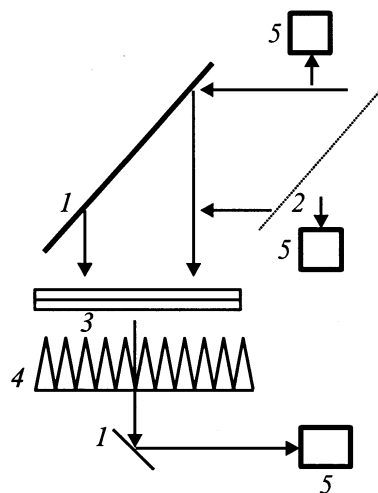


Рис. 1. Упрощенная схема эксперимента нагрева тонких слоев смесей порошков диэлектриков с проводниками: 1 — отражающие металлические зеркала, 2 — слюдяная пластинка квазиоптического ответвителя, 3 — облучаемый образец, 4 — поглощающие нагрузки, 5 — микроволновые детекторы.

Состав	R	T	$R + T$	A
PbO	0.143	0.907	1.043	-0.043
CuO	0.112	0.928	1.04	-0.04
Al	0.912	0.138	1.05	-0.05
Si	0.313	0.295	0.608	+0.392
SnO	0.38	0.16	0.54	+0.46
0.5 Ti + 0.5 CuO	0.646	0.422	1.068	-0.068
0.5 Si + 0.5 Al ₂ O ₃	0.525	0.422	0.947	+0.05
0.5 SnO + 0.5 Al ₂ O ₃	0.617	0.389	1.006	-0.006
0.5 Al + 0.5 PbO	0.759	0.257	1.016	-0.016

пучка поверхность слоя и тем самым позволяет избежать возникновения и распространения разряда навстречу пучку при микроволновом пробое внутри порошкового слоя.

Характеристики порошковых слоев были измерены на низком (mW) уровне мощности на специальном стенде, собранном по квазиоптической схеме. Контрольные измерения на кварцевых пластинах различной толщины показали, что ошибка в определении суммы коэффициента отражения и пропускания не превышает ± 0.05 .

Измерения характеристик стеклянных пластинок, использованных в качестве подложек для порошковых слоев для одной пластинки, дали значение коэффициента отражения $R = 0.25-0.32$, коэффициента пропускания $T = 0.46-0.53$, что соответствует коэффициенту поглощения $A \approx 0.22-0.23$. В случае пакета из двух стеклянных пластинок $R = 0.4-0.43$, $T \approx 0.34$ и $A \approx 0.23-0.26$. При столь высоких значениях коэффициентов отражения и поглощения их использование при измерениях характеристик порошковых слоев вряд ли оправдано из-за возможных ошибок. Поэтому при измерении характеристик порошков при низком уровне мощности в качестве подложки использовалась полуволновая (1 mm) пластина из плавленного кварца. Результаты измерений для смесей порошков различного состава приведены в таблице.

Как видно из таблицы, в тонких слоях диэлектрических порошков окислов свинца и меди поглощение отсутствует, а наблюдаемое отличие суммы $R + T$ от 1 лежит в пределах ошибок измерений. Для этих порошков малое значение и коэффициента отражения.

В порошке алюминия наблюдается достаточно большой коэффициент отражения, что, видимо, связано с существованием контактов между частицами и поведением слоя порошка аналогично поведению сплошной среды. Однако нужно отметить и достаточно высокое значение мощности излучения, проходящего через слой диспергированного материала.

В порошках кремния и окисла олова с полупроводниковой проводимостью поглощение значительно. Сопоставление их характеристик с характеристиками тонкой (0.45 mm) кремниевой пластины с электронной проводимостью (КЭФ-4.5) показало близость их характеристик. Такое поведение полупроводниковых порошков так же,

как и в случае порошка алюминия, видимо, вызвано существованием контактов между частицами.

Смеси проводящих и диэлектрических порошков, как видно из таблицы, не обладают заметным поглощением, при этом оказываются довольно высокими значения коэффициентов отражения (~ 0.5).

3. Однократное воздействие на смесь порошков кремния и окисла свинца (1:1) микроволновым импульсом при интенсивности выше $10 \text{ kW} \cdot \text{cm}^{-2}$ и длительности 5–7 ms приводит к возникновению одной-двух точек проплавления смеси. В серии последующих импульсов наблюдаются увеличение локальных очагов проплавления и образование сплошного проплавления пятна после 5 импульсов. Аналогичная ситуация наблюдалась и в смеси порошка окисла олова с окислом свинца (1:1). Фотография образовавшегося расплавленного слоя приведена на рис. 2. Интересно отметить неоднородность проплавления по толщине слоя: со стороны падения пучка на образец материала расплава прочно соединился со стеклянной подложкой, тогда как со стороны второго стекла порошок проплавлен неоднородно и сохраняются участки неизменной смеси.

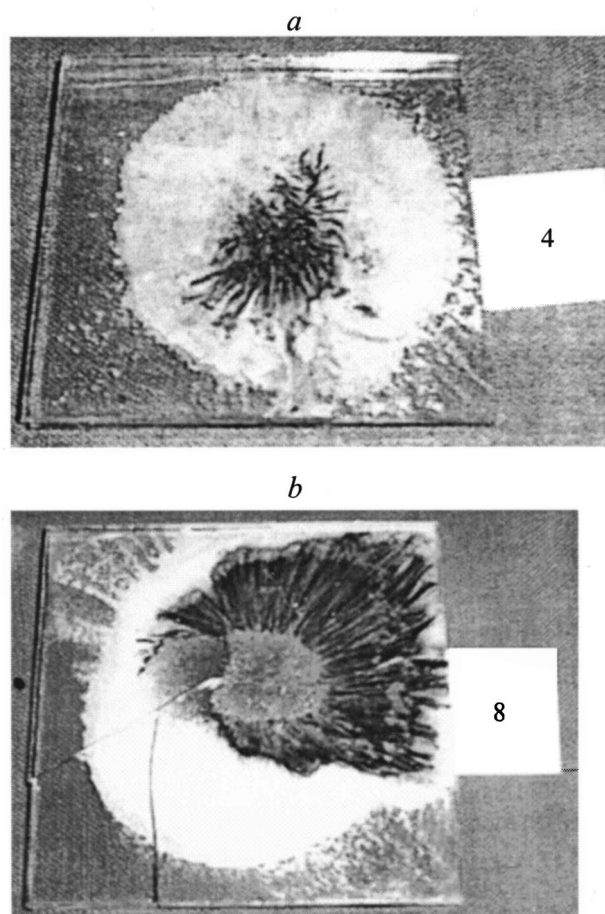


Рис. 2. Облученные образцы: *a* — смесь порошков 25% Si и 75% PbO, интенсивность $\sim 10 \text{ kW} \cdot \text{cm}^{-2}$, 5 импульсов длительностью 7 ms; *b* — смесь порошков 50% Ti и 50% PbO, интенсивность $\sim 10 \text{ kW} \cdot \text{cm}^{-2}$, 1 импульс приблизительно 8 ms.

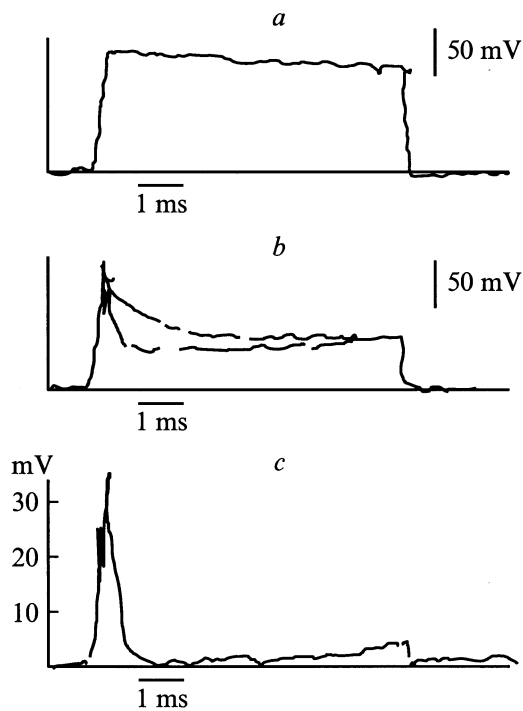


Рис. 3. Импульс отраженного излучения для смеси 25% Si и 75% PbO: *a* — первый импульс, *b* — второй и третий импульсы, *c* — четвертый импульс.

При уменьшении длительности импульсов до 2 ms не обнаруживается образования точек проплавления при 4–5 последовательных импульсах. Точно также не обнаруживается проплавленных точек и при длительностях импульсов 7–8 ms, но при снижении интенсивности до $4\text{--}5 \text{ kW} \cdot \text{cm}^{-2}$.

Несколько иная картина наблюдалась в смесях титана с окислом (1:1) свинца. Уже при $10 \text{ kW} \cdot \text{cm}^{-2}$ сплошное пятно проплавления возникло при 2 импульсах длительностью 4 ms каждый.

Бурная реакция с выделением металлической меди наблюдалась в смеси (1:1) порошка титана и окисла меди. Реакция такого рода инициировалась при снижении интенсивности излучения до $5\text{--}5.5 \text{ kW} \cdot \text{cm}^{-2}$ и длительности импульса до 1 ms. При дальнейшем понижении интенсивности для инициации реакции требовалось увеличение длительности импульса.

Совершенно иная картина воздействия регистрируется в смесях (1:1) порошка титана с окислом алюминия. При интенсивности $8\text{--}9 \text{ kW} \cdot \text{cm}^{-2}$ и длительности импульса 7 ms в порошке возникают только отдельные точки проплавления. При этом в каждом импульсе происходит радиальное разбрасывание порошка между стеклянными пластинками, что, во-видимому, вызвано разогревом внутри порового газа. Разбрасывание (разбрызгивание) порошка от центра пучка на периферию между стеклянными пластинами наблюдается и в случае порошка

кремния. По-видимому, происходит разогрев газа в порах между частицами порошка.

Регистрация сигнала отраженного мишенями излучения демонстрирует изменение отражения в течение импульса излучения (рис. 3). При этом наблюдается изменение сигнала в последовательности импульсов. Как видно из приводимых осциллограмм (рис. 3, *a*), уже в первом импульсе регистрируется некоторое плавное уменьшение отражения в течение импульса. Уже в следующем импульсе наблюдается двукратное падение отраженного сигнала за 2–3 ms. А в последующих падение сигнала происходит за 1 ms и конечный уровень отраженного сигнала постоянно уменьшается.

Для обнаружения изменения электрических параметров порошковых смесей при воздействии микроволнового импульса были выполнены специальные измерения на отдельном микроволновом стенде при следующих параметрах излучения: длина волны излучения 2.5 см, интенсивность около $10 \text{ kW} \cdot \text{cm}^{-2}$, длительность импульса 5 μs . Для измерения в образец между пластинами помещались два коаксиальных электрода, нагруженных на активное сопротивление 50Ω , и измерялся импульс напряжения, возникающий при воздействии излучения. Однополярный импульс напряжения (отрицательной полярности) возникал на центральном электроде только тогда, когда между диэлектрическими пластинами помещался порошок кремния или его смеси с порошком окисла меди (рис. 4). Средние величины сигнала составляли около 0.2 V для порошка кремния и его смеси с окислом меди при объемном соотношении 1:3. Для смесей кремния и окисла меди при соотношении 1:1 и 3:1 средняя величина импульса повышалась до 1–1.5 V. Для смесей 1:1 и 1:3 наблюдались точки ярких вспышек по поверхности порошка. В смесях кремния и его смеси с окислом меди 3:1 вспышек свечения не наблюдалось.

4. Согласно [5], характерные длины поглощения в плоском слое смеси порошков из непоглощающих и проводящих шариков радиуса $a_0 \ll \lambda$ с концентрацией проводящих шариков $n_0 = 3\alpha/4\pi a_0^3$ определяются выражениями

$$h_0 \approx \lambda |\varepsilon|^2 / 18\pi\alpha\varepsilon_i \quad \text{при} \quad \delta = c/(4\pi\sigma\omega)^{1/2} > a_0,$$

$$h_0 \approx (4a_0/9\alpha)(\lambda\sigma/c)^{1/2} \quad \text{при} \quad a_0 > \delta \text{ и } |\varepsilon| \gg 1.$$

Здесь ε — диэлектрическая постоянная проводящих шаров; ε_i — ее мнимая часть; σ — проводимость материала проводящих шариков; ω — круговая частота излучения; α — доля объема, занимаемая проводящими шарами. В случае порошка кремния с окислом алюминия $\delta > a_0$ и при $\alpha = 0.5$ $h_0 \approx 0.44 \text{ cm}$; в случае порошка титана с окислом меди $\delta < a_0$ и при $\alpha = 0.5$ $h_0 \approx 0.4 \text{ cm}$ для фракции диаметром $4 \cdot 10^{-3} \text{ cm}$. Отсюда видно, что коэффициент поглощения при характерной толщине порошкового слоя $h = 0.05 \text{ cm}$ $A = (1-R)[1 - \exp(-h/h_0)]$ 0.05–0.06, что соответствует результатам измерений на низком уровне мощности.

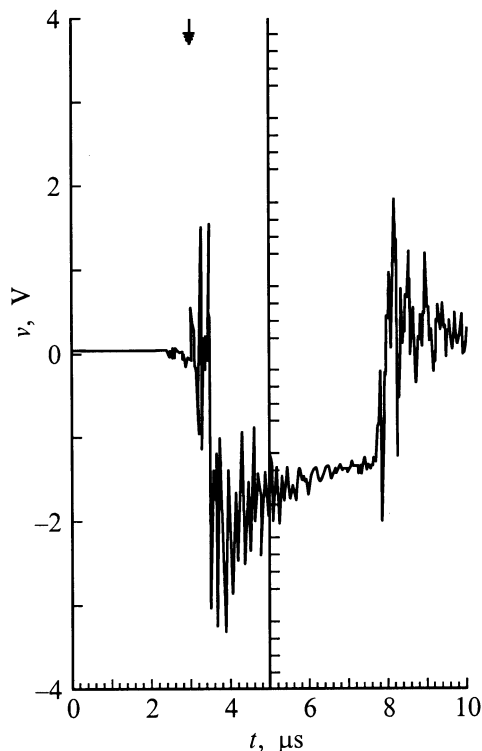


Рис. 4. Импульс напряжения между внешним кольцом и центральным электродом при нагрузке 50Ω . Смесь порошков 50% Si и 75% CuO.

Расплавление порошка в серии мощных импульсов показывает, что коэффициент поглощения при интенсивностях около $10\text{ kW} \cdot \text{cm}^{-2}$ возрастает и становится существенно выше того значения, которое имеет место при слабых полях. Отмеченная выше неоднородность пропавления по толщине порошка свидетельствует о том, что характерный размер поглощения упал ниже толщины слоя (0.05 cm), т.е. упал на порядок величины по сравнению с характерным масштабом поглощения при низких интенсивностях.

При оценках коэффициентов отражения порошковых слоев необходимо учесть когерентность волн, рассеиваемых отдельными крупинками, так как расстояние между ними существенно меньше длины волны излучения. Величина коэффициента отражения должна быть пропорциональна сечению рассеяния отдельной крупинкой. Для хорошо проводящего шарика это сечение [5] дается выражением $S_r = 8\pi(2\pi)^4 a_0^6 / 3\lambda^4$. Для поглощающего диэлектрического шарика сечение меньше на множитель $(\epsilon - 1)^2 / (\epsilon + 2)^2$. Для кварца в нашем случае этот коэффициент равен 0.25. По-видимому, с этим и связано различие в коэффициентах отражения, полученное на низких уровнях мощности для порошков окислов свинца и меди и смесей порошков, в которых половина состава из хорошо проводящих частиц. Но это же различие в рассеянии диэлектрическими и проводящими крупинками высокоинтенсивных потоков микроволнового излучения

позволяет сделать некоторое заключение относительно процессов, протекающих в порошках при облучении их волнами большой амплитуды. Как мы видим (рис. 3), в течение мощного импульса излучения происходит резкое падение отраженного сигнала. Возникает вопрос, каким образом может упасть сечение рассеяния шарика с высокой проводимостью. По-видимому, мы сталкиваемся с явлением поверхностного микроволнового пробоя, аналогичного тому, которое наблюдалось в [4]. Действительно, электрическое поле волны ($\sim 3\text{ kV} \cdot \text{cm}^{-1}$) существенно ниже критического поля пробоя воздуха ($\sim 3\text{ kV} \cdot \text{cm}^{-1}$). В порах между крупинками порошка критическое поле еще выше этого значения, так как при размере пор $10\text{--}40\ \mu\text{m}$ частота диффузионного устранения электронов $\nu_d \approx D_e / a_0^2 \approx 10^9\ \text{s}^{-1}$ существенно выше частоты трехчастичного прилипания электронов в воздухе при нормальном давлении $\nu_a \approx 10^8\ \text{s}^{-1}$. Терехратного усиления поля на сферических проводящих шарах недостаточно для превышения порога пробоя внутри пор. В силу этого возникновение плазмы, по-видимому, возможно только при поверхностном пробое диэлектрика, как это наблюдалось в [4]. При заполнении пор плазмой возникает среда, которую можно было бы назвать "ячеистой" плазмой, так как она представляет собой ячейки в порошке, заполненные плазмой. Рост концентрации заряженных частиц в порах должен вести к росту поглощения излучения до тех пор, пока величина скин-слоя не станет меньше диаметра поры. Далее из-за понижения поглощения рост концентрации должен, видимо, прекратиться. Можно предположить существование некоторого условия, при котором поглощение наиболее эффективно $\delta \approx a_0$, так как размер пор порядка a_0 . Из этого условия нетрудно получить минимальное значение эффективной толщины поглощения $h_{\text{min}} \approx 2^{1/2} \lambda / 9\pi\alpha = 0.02\text{ cm}$, что примерно соответствует эксперименту. В этом случае мы имеем терехкомпонентную систему, аналогичную той, которая рассмотрена в работе [6].

Высказанные в предыдущем абзаце предположения подтверждаются наблюдением однополярного импульса напряжения, генерируемого в порошке на коаксиальных электродах (рис. 4). Именно такого рода сигналы регистрировались в импульсном микроволновом разряде в газах при высоких давлениях [7].

Если большие коэффициенты поглощения обеспечиваются возникающей при поверхностных пробоях плазмой, то возникает вопрос, достаточна ли величина поглощенной энергии для расплавления компонентов порошкового слоя. Приняв значение коэффициента плазмосодержащей среды $A_{pl} \approx 1$, легко подсчитать плотность энергии, выделившейся в порошке за один импульс,

$$q_0 = s\tau/h \approx 10^4 \cdot 7 \cdot 10^{-3} / 0.05 \approx 1.4\text{ kJ} \cdot \text{cm}^{-3}.$$

Необходимые для расплавления затраты энергии могут быть оценены с помощью соотношения

$$q \approx \alpha(\Delta H_1 + Cp_1 \Delta T_1) \rho_1 / M_1 + (1 - \alpha) Cp_2 \Delta T_2 \rho_2 / M_2.$$

Здесь ΔH_1 — энергия плавления материала с меньшей температурой плавления; Cp, ρ, M — теплоемкость, плотность и молекулярный вес компонентов порошка. Для смеси кремния с окислом свинца значение $q \approx 1.7 \text{ kJ} \cdot \text{cm}^{-3}$. Таким образом, энергетически использованные длительности и интенсивность импульса излучения находятся в согласии с оценкой необходимых энергозатрат. Заметим, что образование в первых импульсах точечных расплавлений, видимо, свидетельствует о том, что сечение поглощения в локальных областях порошка превышает геометрическую площадь этих областей. Последующее за первым импульсом нарастающее увеличение площади расплава, вероятно, связано с образованием фазы с полупроводниковыми свойствами.

Наиболее убедительно о высоких значениях локального сечения поглощения излучения смесями говорит эксперимент, в котором происходит возбуждение твердофазной окислительно-восстановительной реакции в смеси $0.5 \text{ Ti} + 0.5 \text{ CuO}$. Для воспламенения этой смеси требуется значительная температура ($\sim 10^3 \text{ K}$). Как следует из измерений минимальных затрат энергии излучения, даже при $A \approx 1$ средняя температура смеси не может превысить 200 K .

Еще одним подтверждением высокой локальности энерговыделения служат данные об образовании точечных расплавлений в смеси $0.5 \text{ Al} + 0.5 \text{ Al}_2\text{O}_3$. В этой смеси для расплавления алюминия требуется энерговыход около $3 \text{ kJ} \cdot \text{cm}^{-3}$, тогда как в эксперименте средний энерговыход не мог превышать $1.6 \text{ kJ} \cdot \text{cm}^{-3}$.

5. Суммируем основные результаты работы. Измерения коэффициентов отражения и пропускания тонких слоев (0.05 cm) диэлектрических порошков и их смесей с полупроводниковыми или металлическими порошками, выполненные квазиоптическим методом на низком уровне микроволновой мощности, дали низкие значения коэффициента поглощения (не более 0.05), что согласуется с результатами расчетов поглощения, выполненных для рассматриваемых механических смесей. Коэффициенты отражения смесей с проводящими частицами оказываются в несколько раз выше, чем для диэлектрических порошков.

При интенсивностях около $10 \text{ kW} \cdot \text{cm}^{-2}$ в смесях порошков из проводящих и диэлектрических частиц установлено образование точечных расплавов материала и сплошного расплавления в серии 4–7 импульсов длительностью 5–8 ns. Установлены высокий локальный разогрев материала, а также неоднородность проплавления по толщине порошкового слоя, свидетельствующая о падении характерного масштаба поглощения до значения $h_0 \approx 0.05 \text{ cm}$.

Зарегистрировано падение отражения от смесей порошков в течение микроволнового импульса, а также генерация импульса напряжения на электродах, размещенных в порошковом слое. Полученные при высокой интенсивности результаты опытов свидетельствуют о развитии в порошках поверхностных пробоев в контактах проводящих и диэлектрических частиц и образовании плазмы в

межпоровом пространстве. Именно плазмообразование, на наш взгляд, ответственно за эффективное поглощение микроволн.

Авторы выражают свою искреннюю признательность Л.В. Колику и В.А. Плотникову, обеспечившим эксплуатацию гиротронного комплекса, а также Н.И. Малых за помощь в постановке квазиоптических измерений на низком уровне мощности.

Работа выполнена по контракту МНТЦ 908.

Список литературы

- [1] Agrawal D.J. / Mater. Edu. 1999. Vol. 19. P. 49–58.
- [2] Быков Ю.В., Еремеев А.Г. // Высокочастотный разряд в волновых полях. Горький: ИПФ, 1988. С. 265–289.
- [3] Ковнеристый Ю.Н., Лазарева И.Н., Раваев А.А. Материалы, поглощающие СВЧ излучения. М.: Наука, 1982. 164 с.
- [4] Batanov G.M., Bol'shakov E.F., Dorofeyuk A.A. et al. // J. Phys. D. 1996. Vol. 29. P. 1641–1649.
- [5] Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М. Электродинамика сплошных сред. М.: Наука, 1982. § 93, 92.
- [6] Галстян Е.А., Раваев А.В. // Изв. вузов. Радиофизика. 1987. Т. 30. № 10. С. 1243–1248.
- [7] Грицинан С.И., Дорофеев А.А., Косый И.А., Магунов А.Н. // ТВТ. 1987. Т. 25. № 6. С. 1068–1071.